

AN 1993:439133 CAPLUS
 DN 119:39133
 ED Entered STN: 24 Jul 1993
 TI Manufacture of copper-lined laminated circuit boards
 IN Nonogaki, Mitsuhiro; Kitamura, Yoichi; Takahama, Takashi
 PA Mitsubishi Electric Corp., Japan
 SO Jpn. Kokai Tokkyo Koho, 6 pp.
 CODEN: JKXXAF
 DT Patent
 LA Japanese
 IC ICM H05K001-03
 ICS B32B015-08
 CC 76-14 (Electric Phenomena)
 Section cross-reference(s): 38

FAN.CNT 1

| | PATENT NO. | KIND | DATE | APPLICATION NO. | DATE |
|------|----------------|------|----------|-----------------|----------|
| ✓ PI | JP 04338691 | A2 | 19921125 | JP 1991-111643 | 19910516 |
| | JP 2702002 | B2 | 19980121 | | |
| PRAI | JP 1991-111643 | | 19910516 | | |

CLASS

| PATENT NO. | CLASS | PATENT FAMILY CLASSIFICATION CODES |
|------------|-------|------------------------------------|
|------------|-------|------------------------------------|

| | | |
|-------------|-----|------------|
| JP 04338691 | ICM | H05K001-03 |
| | ICS | B32B015-08 |

AB The varnish for impregnating into prepreg sheets in manufacturing the title laminated boards comprises (1) 100 weight parts mixture containing brominated phenol-epichlorohydrin-salicylaldehyde epoxy polymer, a diaminotriazine, and a polyphenol compound, (2) 0.01-0.3 weight parts imidazole, and (3) 1-100 weight parts normal chained polymer. The varnish has improved heat-resistance and elec. insulation.

ST varnish prepreg laminate circuit board

IT Impregnating materials
 (epoxy resin mixture, for copper-lined laminated circuit board prepregs)

IT Epoxy resins, uses
 RL: USES (Uses)
 (impregnating material for copper-lined laminated circuit board prepregs)

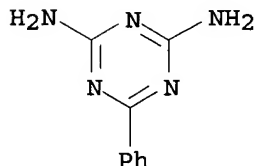
IT Electric circuits
 (printed, boards, varnish for prepreg in manufacturing of)

IT 91-76-9, Benzoguanamine 931-36-2, 2-Ethyl-4-methylimidazole 25085-75-0, Bisphenol A-formaldehyde copolymer 60092-26-4, Polyparabanic acid 148569-18-0

RL: USES (Uses)
 (impregnating material mixture containing, for copper-lined laminated circuit board prepregs)

No
 translation
 benzoguanamine

RN 91-76-9 REGISTRY
 ED Entered STN: 16 Nov. 1984
 CN 1,3,5-Triazine-2,4-diamine, 6-phenyl- (9CI) (CA INDEX NAME)
 OTHER CA INDEX NAMES:
 CN s-Triazine, 2,4-diamino-6-phenyl- (6CI, 8CI)
 OTHER NAMES:
 CN 2,4-Diamino-6-phenyl-1,3,5-triazine
 CN 2,4-Diamino-6-phenyl-s-triazine
 CN 2,6-Diamino-4-phenyl-1,3,5-triazine
 CN 2-Phenyl-4,6-diamino-1,3,5-triazine
 CN 2-Phenyl-4,6-diamino-s-triazine
 CN 4,6-Diamino-2-phenyl-s-triazine
 CN 6-Phenyl-1,3,5-triazine-2,4-diamine
 CN Benzoguanamine
 CN Benzoguanimine
 CN ENT 60118
 CN NSC 3267
 FS 3D CONCORD
 DR 26676-98-2
 MF C9 H9 N5
 CI COM
 LC STN Files: BEILSTEIN*, BIOSIS, CA, CAOLD, CAPLUS, CASREACT, CBNB,
 CHEMCATS, CHEMLIST, CIN, CSCHM, EMBASE, HODOC*, HSDB*, IFICDB, IFIPAT,
 IFIUDB, MRCK*, MSDS-OHS, NIOSHTIC, PROMT, RTECS*, SPECINFO, TOXCENTER,
 USPAT2, USPATFULL
 (*File contains numerically searchable property data)
 Other Sources: EINECS**, NDSL**, TSCA**
 (**Enter CHEMLIST File for up-to-date regulatory information)



PROPERTY DATA AVAILABLE IN THE 'PROP' FORMAT

874 REFERENCES IN FILE CA (1907 TO DATE)
 295 REFERENCES TO NON-SPECIFIC DERIVATIVES IN FILE CA
 877 REFERENCES IN FILE CAPLUS (1907 TO DATE)
 53 REFERENCES IN FILE CAOLD (PRIOR TO 1967)

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 04-338691

(43)Date of publication of application : 25.11.1992

(51)Int.Cl.

H05K 1/03
B32B 15/08
B32B 15/08

(21)Application number : 03-111643

(71)Applicant : MITSUBISHI ELECTRIC CORP

(22)Date of filing : 16.05.1991

(72)Inventor : NONOGAKI MITSUHIRO
KITAMURA YOICHI
TAKAHAMA TAKASHI

(54) MANUFACTURE OF COPPER-PLATED LAMINATED BOARD

(57)Abstract:

PURPOSE: To manufacture a copper-plated laminated board having excellent reliability of heat resistance, long term electric insulation, and stable quality.

CONSTITUTION: A sheetlike base material is impregnated with resin composition in which 0.01-0.3 pts.wt. of imidazoles and 1 100 pts.wt. of normal chain polymer compound are mixed with 100 pts.wt. of total amount of polyepoxy compound (A) in which epichlorohydrin is reacted with condensate of phenol bromide and salicylaldehyde, special diaminotriazine (B), and polyphenol compound (C), a polycondensate of bisphenol A and formaldehyde.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平4-338691

(43) 公開日 平成4年(1992)11月25日

| (51) Int.Cl. ⁵ | 識別記号 | 庁内整理番号 | F I | 技術表示箇所 |
|---------------------------|-------|---------|-----|--------|
| H 0 5 K 1/03 | K | 7011-4E | | |
| B 3 2 B 15/08 | J | 7148-4F | | |
| | 1 0 5 | 7148-4F | | |

審査請求 未請求 請求項の数1(全 6 頁)

(21) 出願番号 特願平3-111643

(22) 出願日 平成3年(1991)5月16日

(71) 出願人 000006013

三菱電機株式会社

東京都千代田区丸の内二丁目2番3号

(72) 発明者 野々垣 光裕

尼崎市塚口本町8丁目1番1号 三菱電機
株式会社生産技術研究所内

(72) 発明者 北村 洋一

尼崎市塚口本町8丁目1番1号 三菱電機
株式会社生産技術研究所内

(72) 発明者 高浜 ▲陸▼

尼崎市塚口本町8丁目1番1号 三菱電機
株式会社生産技術研究所内

(74) 代理人 弁理士 高田 守 (外1名)

(54) 【発明の名称】 銅張積層板の製法

(57) 【要約】

【目的】 耐熱性、長期電氣的絶縁の信頼性などに優れた安定した品質を有する銅張積層板を製造する。

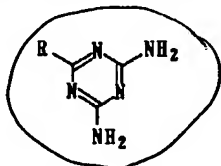
【構成】 臭素化フェノールとサリチルアルデヒドとの縮合物にエピクロロヒドリンを反応させたポリエポキシ化合物(A)、特定のジアミノトリアジン(B)およびビスフェノールAとホルムアルデヒドとの重縮合物であるポリフェノール化合物(C)の合計量100重量部に対し、イミダゾール類0.01~0.3重量部および直鎖状高分子化合物1~100重量部を配合した樹脂組成物をシート状基材に含浸させた。

1

【特許請求の範囲】

【請求項1】 臭素化フェノールとサリチルアルデヒドとの縮合物にエピクロロヒドリンを反応させてえられる分子量800~5000のポリエポキシ化合物と、一般式(I)：

【化1】



(式中、 $\textcircled{\text{R}}$ はハロゲン原子、 $-\text{C}_6\text{H}_5$ または炭素数1~5のアルキル基を示す)で示されるジアミノトリアジンと、ビスフェノールAとホルムアルデヒドとの重縮合物である分子量1000以上のポリフェノール化合物とを、ポリエポキシ化合物のエポキシ基1当量に対するジアミノトリアジンの活性水素当量とポリフェノール化合物のフェノール性水酸基当量の合計が0.3~1.5当量で、かつジアミノトリアジンとポリフェノール化合物のモル比が1/99~40/60の割合で配合し、ポリエポキシ化合物、ジアミノトリアジンおよびポリフェノール化合物の合計量100重量部に対し、イミダゾール類0.01~0.3重量部および直鎖状高分子化合物1~100重量部を配合した樹脂組成物を、シート状基材に含浸、乾燥したのち、プリプレグシートとし、このプリプレグシートを銅箔とともに積層、加熱、圧縮することを特徴とする銅張積層板の製法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は銅張積層板の製法に関する。さらに詳しくは、耐熱性に優れるとともに接着強度、機械強度、長期電氣的絶縁の信頼性にも優れた多層プリント配線板として有用な銅張積層板の製法に関する。

【0002】

【従来の技術】 近年、コンピュータ、制御器、計測機などの産業用電子機器の発展はめざましく、それらに使用されるプリント配線板も高密度配線化、多層化が行なわれるようになってきている。

【0003】 しかし、これらのプリント配線板に主に使用されている従来のガラス基材エポキシ樹脂銅張積層板では、寸法安定性、耐熱性などの点で要求仕様を満足できない状況となり、耐熱性の優れた銅張積層板の開発が要望されている。耐熱性の優れた銅張積層板としては、たとえば特公昭60-26423号公報に示されているようなポリイミド樹脂(たとえばポリアミノビスマレイミド樹脂)とガラス基材からなるものが知られており、ガラス転移温度が高い、加熱時の寸法安定性に優れるなどの特徴を有している。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】 しかし、前記ポリイミド樹脂は吸水性が高く、湿熱時の寸法安定性に課題があ

2

り、プリプレグ製造時に用いる溶剤が沸点の高い極性溶剤であるため積層成形時に溶剤が残存しやすく、ポリイミド銅張積層板の品質にバラツキを生じるなどの欠点を有しており、これらの解決が課題とされていた。

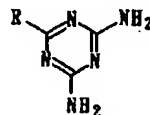
【0005】 本発明はこのような背景に鑑みてなされたものであり、ポリイミド銅張積層板と同程度の優れた耐熱性を有し、しかも接着性、機械強度、長期電氣的絶縁の信頼性に優れた銅張積層板の製法を提供することを目的とする。

【0006】

【課題を解決するための手段】 本発明は、臭素化フェノールとサリチルアルデヒドとの縮合物にエピクロロヒドリンを反応させてえられる分子量800~5000のポリエポキシ化合物(以下、ポリエポキシ化合物(A)という)と、一般式(I)：

【0007】

【化2】



(式中、Rはハロゲン原子、 $-\text{C}_6\text{H}_5$ または炭素数1~5のアルキル基を示す)で示されるジアミノトリアジン(以下、ジアミノトリアジン(B)という)と、ビスフェノールAとホルムアルデヒドとの重縮合物である分子量1000以上のポリフェノール化合物(以下、ポリフェノール化合物(C)という)とを、ポリエポキシ化合物(A)のエポキシ基1当量に対するジアミノトリアジン(B)の活性水素当量とポリフェノール化合物(C)のフェノール性水酸基当量の合計が0.3~1.5当量で、かつジアミノトリアジン(B)とポリフェノール化合物(C)のモル比が1/99~40/60の割合で配合し、ポリエポキシ化合物(A)、ジアミノトリアジン(B)およびポリフェノール化合物(C)の合計量100部(重量部、以下同様)に対し、イミダゾール類0.01~0.3部および直鎖状高分子化合物1~100部を配合した樹脂組成物を、シート状基材に含浸、乾燥したのち、プリプレグシートとし、このプリプレグシートを銅箔とともに積層、加熱、圧縮することを特徴とする銅張積層板の製法に関する。

【0008】

【作用】 樹脂成分としてポリエポキシ化合物(A)を主体とし、これにポリフェノール化合物(C)を反応させることにより架橋密度を高めて耐熱性を向上させる。また、トリアジン環を含むジアミンを導入することにより、さらに銅張積層板の寸法安定性を増大させると同時に、導体から溶出した銅を捕捉する作用によって高温時の長期的な電氣的絶縁の高信頼性をうることができる。また架橋網目構造中にリニアな耐熱性直鎖状高分子化合物を介在させることにより、耐熱性を維持しつつ、靱性、強接着性を与える樹脂組成物となり、このような樹脂組成物

3

を用いることにより、銅箔または基材との接着性を向上させることができる。

【0009】

【実施例】本発明の製法においては、ポリエポキシ化合物(A)、ジアミノトリアジン(B)、ポリフェノール化合物(C)、イミダゾール類および直鎖状高分子化合物を配合した樹脂組成物が使用される。

【0010】前記ポリエポキシ化合物(A)は臭素化フェノールとサリチルアルデヒドとの縮合物にエピクロロヒドリンを反応させてえられる化合物である。

【0011】前記臭素化フェノールとしては、たとえばp-プロモフェノール、m-プロモフェノール、o-プロモフェノールなどがあげられる。

【0012】前記ポリエポキシ化合物(A)としては分子量800~5000のものが使用され、さらに2000~3000のものが好ましい。800未満では最終的な硬化物が脆くなり、5000をこえると反応が充分に行なわれず、耐熱性が低下する。

【0013】このようなポリエポキシ化合物(A)は、たとえば臭素化フェノール1モルに対し、サリチルアルデヒドを好ましくは0.1~3.0モル、さらに好ましくは0.5~1.5モルの割合で、酸性触媒の存在下、好ましくは80~250℃、さらに好ましくは100~180℃の温度範囲で、1~6時間反応させてえられた縮合物に対し、該縮合物の水酸基1当量当たり、3当量以上のエピクロロヒドリンを公知の方法、すなわち、触媒およびアルカリ水溶液(たとえば50% NaOH 水溶液)の存在下で、50~150℃の温度で反応させることによりうるることができる。前記触媒としては、たとえばベンジルトリメチルクロライド、ベンジルトリメチルプロマイド、ベンジルジメチルアミン、トリエチルアミン、N-メチルモルホリン、トリフェニルホスホニウムプロマイド、トリフェニルホスホニウムクロライド、テトラエチルアンモニウムクロライドなどがあげられる。

【0014】前記ジアミノトリアジン(B)は前記一般式(I)で示される化合物であり、その具体例としては、たとえば2-クロロ-4,6-ジアミノ-S-トリアジン、ベンゾグアナミン、2,4-ジアミノ-6-メチル-S-トリアジンなどがあげられる。

【0015】前記ポリフェノール化合物(C)はビスフェノールAとホルムアルデヒドとの重縮合物で、分子量1000以上のものであり、さらに1500~3000のものが好ましい。分子量が1000未満では最終的な硬化物の機械的特性、耐熱性、耐湿性が低下する。

【0016】このようなポリフェノール化合物(C)は、たとえばビスフェノールAとホルマリンをシュウ酸とともに加熱反応させたのち、脱水、濃縮してえられる。

【0017】前記ポリエポキシ化合物(A)とジアミノトリアジン(B)とポリフェノール化合物(C)との配合割合は、ポリエポキシ化合物(A)のエポキシ基1当量当り、

4

ジアミノトリアジン(B)の活性水素当量とポリフェノール化合物(C)のフェノール性水酸基当量の合計が0.3~1.5当量、好ましくは0.6~1.0当量であり、かつジアミノトリアジン(B)とポリフェノール化合物(C)のモル比が1/99~40/60、好ましくは1/10~1/2になる割合である。

【0018】ジアミノトリアジン(B)の活性水素当量とポリフェノール化合物(C)のフェノール性水酸基当量の合計が0.3未満では架橋密度が充分でなく耐熱性が劣り、1.5当量をこえると架橋密度が上がりすぎて機械的強度が低くなる。またジアミノトリアジン(B)とポリフェノール化合物(C)のモル比が1/99よりジアミノトリアジン(B)の割合が小さいと、寸法安定性および高温時の長期的な電気的絶縁の信頼性の向上の効果が少なく、40/60よりジアミノトリアジン(B)の割合が大きくなると、溶剤に対する溶解性がわるくなり汎用されている溶剤に溶けにくくなる。

【0019】硬化触媒として配合されるイミダゾール類としては、たとえば2-メチルイミダゾール、2-エチル-4-メチルイミダゾール、1-ベンジル-2-メチルイミダゾール、2-フェニルイミダゾール、2-ウンデシルイミダゾール、2-ヘプタデシルイミダゾールなどがあげられる。

【0020】イミダゾール類の添加量は、ポリエポキシ化合物(A)、ジアミノトリアジン(B)およびポリフェノール化合物(C)の合計量100部に対して0.01~0.3部の範囲であり、さらに0.03~0.1部の範囲であることが好ましい。0.01部未満では反応速度が遅く、積層板用プリプレグとした際のレジンの流動性制御が困難になる。また、0.3部をこえると積層用プリプレグとした際のポットライフが短くなり好ましくない。

【0021】直鎖状高分子化合物とは、たとえばポリエーテルイミド、ポリスルホン、ポリパラベン酸、ポリフェニレンスルフィド、ポリフェニレンオキサイド、ポリビフェニルテトラカルボン酸イミド、ポリアリルエステル、ポリアリルスルホン、フェノキシ樹脂など汎用の熱可塑性の高分子化合物をいう。とくにガラス転移温度が100℃以上で、かつ分解温度が300℃以上のものが耐熱性の点から好ましい。直鎖状高分子化合物の分子量は通常5000以上、さらには10000~50000が望ましい。5000未満では高分子化合物による韧性および接着性付与の効果が充分えられない。

【0022】直鎖状高分子化合物の配合量はポリエポキシ化合物(A)、ジアミノトリアジン(B)およびポリフェノール化合物(C)の合計量100部に対して1~100部であり、さらに5~20部が好ましい。配合量が1部未満では韧性および接着性付与の効果が充分ではなく、100部をこえると樹脂粘度が上がりすぎ、積層板用プリプレグ製造時の基材への含浸が不充分になる。

【0023】本発明の製法においては、前記樹脂組成物をシート状基材に含浸、乾燥したのち、プリプレグシー

トにされる。

【0024】前記樹脂組成物は通常、溶剤に溶解し、所定濃度（樹脂成分が40～60%程度）の含浸用ワニスとして、プリプレグ製造に適用される。

【0025】ここで使用される溶剤としては、たとえばエチルアルコール、プロピルアルコール、ブチルアルコールなどのアルコール類、ベンゼン、トルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素類、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノンなどのケトン類、エチレングリコールモノメチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテル、ジエチレングリコールモノメチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテルアセテートなど、エチレングリコール、ジエチレングリコールなどのエーテル類およびその酢酸エステルなどが好適に用いられる。N,N'-ジメチルホルムアミド、N,N'-ジメチルアセトアミドなどのアミド類、N-メチル-2-ピロリドンなどの極性溶媒も用いることができるが、これらは沸点が高いため積層板中に残らないように注意する必要がある。またこれらの溶剤は必要に応じて何種類か併用してもよい。

【0026】こうしてえられた含浸用ワニスをシート状基材に含浸させ、たとえば80～200℃で1～30分間乾燥し、プリプレグシートとされる。プリプレグシートの樹脂含有量は通常30～50%である。

【0027】前記シート状基材は、ガラス繊維からなるものが一般的であるが、他に芳香族ポリアミド繊維からなるものを用いてもよい。また、マット状のガラス、ポリエステル、芳香族ポリアミドを用いてもよい。

【0028】えられたプリプレグシートは所定枚数重ねあわせ、銅箔を少なくとも片面に重ねた状態で、通常熱板間80～250℃、圧力5～100kg/cm²で10～300分間加熱加圧して銅張積層板とされる。ここに示した条件は望ましい値であるがこれに限定されるものではない。

【0029】本発明の製法によりえられる銅張積層板は耐熱性、半田耐熱性、接着性、機械強度、電気特性に優れ、高密度多層用基板として好適に用いられる。

【0030】以下、実施例により、本発明をさらに具体的に説明する。

【0031】〔実施例1〕p-プロモフェノール384gとサリチルアルデヒド60gを濃塩酸0.3gの存在下、100℃で30分間反応させたのち、p-トルエンスルホン酸0.5gを加え、180℃で2時間反応させてポリフェノールをえた。このポリフェノール112gにエピクロロヒドリン740g、テトラエチルアンモニウムクロライド1g、NaOH42gを加え、70℃で反応させて分子量3000のポリエポキシ化合物(A)をえた。

【0032】またビスフェノールA228gに対し、37%ホルマリン50ccとシュウ酸0.8gを加え、120℃で2時間反応させたのち、脱水、濃縮して分子量3000のポリフェノール化合物(C)をえた。

【0033】えられたポリエポキシ化合物(A)174g、ポリフェノール化合物(C)95g（フェノール性水酸基/エポキシ基の当量比：0.8）、ベンゾグアナミン1.87g（活性水素/エポキシ基の当量比：0.01、ベンゾグアナミン/ポリフェノール化合物(C)のモル比：1/3）、2-エチル-4-メチルイミダゾール0.3g、ポリバラバン酸16gを配合し、エチレングリコールモノメチルエーテル190gに溶解し、60%濃度の含浸用ワニスをえた。

【0034】えられた含浸用ワニスを厚さ0.18mmのガラス織布に含浸し、180℃で90分間乾燥して樹脂含有量55%のプリプレグシートをえた。

【0035】このプリプレグシートを4枚重ねて両面に35μmの銅箔を介し、加熱下でプレス成形を行なった。成形条件はプレス温度170℃、プレス圧力40kg/cm²、プレス時間60分とした。

【0036】えられた銅張積層板の物理的、電氣的性質についての評価結果を表1に示す。なお、高温高湿パイアス試験では、図1に示されるようなスルーホール2を有する銅パターンの電極3を設けたサンプルを通常のサブトラクティブ法により作製し、これについて85℃/85%/100Vの条件で試験し、絶縁抵抗が10⁵Ωに低下した時点を短絡時間とした。

【0037】〔実施例2〕実施例1と同様の方法でm-プロモフェノール380gとサリチルアルデヒド122gを反応させてえた縮合物に、エピクロロヒドリン400gを反応させて分子量1500のポリエポキシ化合物(A)をえた。

【0038】実施例1と同様の方法でビスフェノールA684gと37%ホルマリン50ccを反応させて分子量1000のポリフェノール化合物(C)をえた。

【0039】えられたポリエポキシ化合物(A)174g、ポリフェノール化合物(C)89g（フェノール性水酸基/エポキシ基の当量比：0.75）、2,4-ジアミノ-6-メチル-S-トリアジン2.5g（活性水素/エポキシ基の当量比：0.02、2,4-ジアミノ-6-メチル-S-トリアジン/ポリフェノール化合物(C)のモル比：1/5）、2-フェニルイミダゾール0.28g、ポリエーテルイミド20gを配合し、エチレングリコールモノメチルエーテル234gに溶解し、55%濃度の含浸用ワニスをえた。

【0040】えられた含浸用ワニスを厚さ0.18mmのガラス織布に含浸し、180℃で90分間乾燥して樹脂含有量52%のプリプレグシートをえた。

【0041】このプリプレグシートを4枚重ねて両面に厚さ35μmの銅箔を介し、加熱下でプレス成形を行なった。成形条件はプレス温度200℃、プレス圧力40kg/cm²、プレス時間90分とした。

【0042】えられた銅張積層板の物理的、電氣的性質についての評価結果を表1に示す。

〔実施例3〕p-プロモフェノール128gとサリチルアルデヒド122gを氷酢酸600cc中で4℃で攪拌しながら硫酸/氷酢酸混合液（混合比：100cc/300cc）を20分かけて

7

滴下し、4℃で3日間放置してポリフェノールをえた。
このポリフェノール 110 g にエピクロロヒドリン740部
を実施例1と同様の方法で反応させて分子量800のポリ
エポキシ化合物(A)をえた。

【0043】えられた分子量800のポリエポキシ化合物
(A)174 g、実施例1で用いた分子量3000のポリフェノ
ール化合物(C)77 g (フェノール性水酸基/エポキシ基の
当量比:0.6)とベンゾグアナミン1.3 g (活性水素/エ
ポキシ基の当量比:0.007、ベンゾグアナミン/ポリフ
ェノール化合物(C)のモル比:0.27/1)、2-エチル-4-
メチルイミダゾール0.4 g、ポリスルホン20 g を配合
し、エチレングリコールモノエチルエーテル182 g に溶
解し、60%濃度の含浸用ワニスをえた。

【0044】えられた含浸用ワニスを厚さ0.18mmのガラ
ス織布に含浸し、180℃で90分間乾燥して樹脂含有量55
%のプリプレグシートをえた。

【0045】このプリプレグシートを4枚重ねて両面に
厚さ35μmの銅箔を介し、加熱下でプレス成形を行なっ
た。成形条件はプレス温度180℃、プレス圧力40kg/c
㎡、プレス時間60分とした。

【0046】えられた銅張積層板の物理的、電気的性質
についての評価結果を表1に示す。

【実施例4】実施例1で用いた分子量3000のポリエポキ
シ化合物(A)174 g、実施例2で用いた分子量1000のポリ
フェノール化合物(C)101 g (フェノール性水酸基/エポ
キシ基の当量比:0.85)、2,4-ジアミノ-6-メチル-S-トリ
アジン5.6 g (活性水素/エポキシ基の当量比:0.0
3、2,4-ジアミノ-6-メチル-S-トリアジン/ポリフェ
ノール化合物(C)のモル比:0.45/1)、2-メチルイミダ
ゾール0.35 g、フェノキシ樹脂30 g を配合し、エチレン
グリコールモノメチルエーテル254 g に溶解し、55%濃
度の含浸用ワニスをえた。

【0047】えられた含浸用ワニスを厚さ0.18mmのガラ
ス織布に含浸し、180℃で90分間乾燥して樹脂含有量55
%のプリプレグシートをえた。

8

【0048】このプリプレグシートを4枚重ねて両面に
厚さ35μmの銅箔を介し、加熱下でプレス成形を行なっ
た。成形条件はプレス温度180℃、プレス圧力40kg/c
㎡、プレス時間60分とした。

【0049】えられた銅張積層板の物理的、電気的性質
についての評価結果を表1に示す。

【比較例1】エポキシ化合物のエピコート5046B-80 (油
化シェルエポキシ(株)製) 125 g にジシアンジアミド
2 g、2-エチル-4-メチルイミダゾール0.15 g を加え、
エチレングリコールモノエチルエーテル65 g に溶解し、
53%濃度の積層板用ワニスをえた。

【0050】このワニスを厚さ0.18mmのガラス織布に含
浸し、180℃で60分間乾燥して樹脂含有量45%のプリプ
レグシートをえた。

【0051】このプリプレグシートを4枚重ねて両面に
厚さ35μmの銅箔を介し、加熱下にプレス成形を行なっ
た。成形条件はプレス温度200℃、プレス圧力40kg/c
㎡、プレス時間60分とした。

【0052】えられた銅張積層板の物理的、電気的性質
についての評価結果を表1に示す。

【比較例2】ポリイミド樹脂ケルイミド601 (日本ポリ
イミド社の商品名) 100 g をN-メチル-2-ピロリドン100
g に溶解し、50%濃度の積層板用ワニスをえた。

【0053】このワニスを厚さ0.18mmのガラス織布に含
浸し、150℃で30分間乾燥して樹脂含有量45%のプリプ
レグシートをえた。

【0054】このプリプレグシートを4枚重ねて両面に
厚さ35μmの銅箔を介し、加熱下にプレス成形を行なっ
た。成形条件はプレス温度220℃、プレス圧力40kg/c
㎡、プレス時間90分とした。

【0055】えられた銅張積層板の物理的、電気的性質
についての評価結果を表1に示す。

【0056】

【表1】

表 1

| 実施例番号 | 1 | 2 | 3 | 4 | 比較例1 | 比較例2 |
|---|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|----------------------|
| はんだ耐熱性 (秒、260℃) | >300 | >300 | >300 | >300 | >300 | >300 |
| 銅箔接着強度 (kg/cm、200℃) | 1.5 | 1.4 | 1.5 | 1.7 | 0.2 | 0.8 |
| 絶縁抵抗 (Ω) | 2.0×10^{15} | 2.3×10^{15} | 2.0×10^{15} | 2.0×10^{15} | 5.0×10^{15} | 1.5×10^{15} |
| 吸水率 (%) | 0.12 | 0.14 | 0.14 | 0.13 | 0.12 | 0.40 |
| 熱膨張係数 ($10^{-6}/^{\circ}\text{C}$) | 50 | 46 | 47 | 45 | 80 | 40 |
| 曲げ強度 (kg/mm ²) | 65 | 61 | 62 | 67 | 35 | 46 |
| 熱変形温度 (℃) | 225 | 207 | 230 | 218 | 120 | 235 |
| 高温高湿バイアス試験による短絡時間 (h) | >1500 | >1500 | >1500 | >1500 | 280 | 1200 |

【注】 はんだ耐熱性、銅箔接着強度、絶縁抵抗、吸水率はJIS C 6481、熱膨張係数、曲げ強度、熱変形温度はJIS K 6911による。

以上の実施例に示したように、本発明によってえられる銅張積層板は、従来のポリイミド銅張積層板と同程度の優れた耐熱性を有し、かつ接着強度、機械強度、長期電氣的絶縁の信頼性にも優れた積層板である。

【0057】

【発明の効果】 以上説明したとおり、本発明の製法によ

れば、従来のポリイミド銅張積層板と同程度の優れた耐熱性を有し、かつ接着強度、機械強度、長期電氣的絶縁の信頼性に優れた銅張積層板をうることが可能となる。

【図面の簡単な説明】

【図1】 高温高湿バイアス試験に用いた積層板の説明図である。

